بررسی توزیع اندازه‌ی دانه حین رشد دانه در فولادهای زنگ نزن آستنیتی ۳۰٤H، ۳۱٦L و ۳۲۱ *

جواد راستی [۱]

چکیده

توزیع اندازه‌ی دانه حین رشد دانه در فولادهای زنگ نزن آستنیتی به سه روش مقطع‌زنی متوالی، شبیه سازی سه بعدی مونت‌کارلو و مدل ابراز- لوک بررسی شد. نتایج نشان دادند که توزیع حجمی دانه‌ها در تعداد کم دانه بر توزیع نرمال لگاریتمی منطبق است، در حالی که برای تعداد زیاد دانه بر توزیع گاما منطبق می‌باشد. رشد غیر عادی دانه در فولاد ۳۰٤H حین تاب‌کاری رخ داد، و این می‌تواست ناشی از حضور رسوب کاربید کرُم بر روی مرز دانه‌ها درون ساختار اولیه باشد. جدایش حاصل از انحلال این کاربیدها، تحرک مرز دانه را کاهش داد. در این فولاد با تخمین غلظت کرُم در مرز دانه، رابطه‌ای زمانی برای تحرک مرز دانه به‌دست آمد. روشی هم برای یافتن درصد خطای تعیین اندازه‌ی دانه در سطح مقطع متالوگرافی ارائه شد.

واژه‌های کلیدی رشد دانه، توزیع اندازه‌ی دانه، فولادهای زنگ نزن آستنیتی، تحرک مرزدانه.

Evaluation of Grain Size Distribution during Grain Growth in AISI 304H, 316L and 321 Austenitic Stainless Steels

J. Rasti

Abstract

Grain size distribution during grain growth in austenitic stainless steels was investigated using three different methods, namely serial sectioning analysis, 3D Monte Carlo simulation, and Abbruzzese-Lucke statistical approach. The results showed that the volumetric grain distribution can be well estimated by the log-normal and gamma distribution models for the low and high number of grains, respectively. The abnormal grain growth was taken place in 304H steel during annealing, probably due to the presence of chromium carbide on the grain boundaries within the initial microstructure. The segregation resulted from dissolution of these carbides decreased the grain boundary mobility. A time-dependent equation was obtained for the mobility of grain boundary in this steel after the estimation of chromium content in the grain boundary areas. Moreover, a method was introduced for quantitative evaluation of the error during the measurement of grain size using the metallographic cross sections.

Key Words Grain growth, Grain size distribution, Austenitic stainless steel, Grain boundary mobility.

---

* نسخه‌ی نخست مقاله در تاریخ ۸۸/۲/۲٤ و نسخه‌ی پایانی آن در تاریخ ۸۹/۱۱/۳۰ به دفتر نشریه رسیده است.

(۱) نویسنده‌ی مسئول: عضو هیئت علمی دانشگاه آزاد اسلامی، واحد نراق

مقدمه

اندازه دانه و یکنواختی توزیع آن از جمله مهم‌ترین ویژگی‌های ریزساختاری فولادهای زنگ نزن آستنیتی هستند، و تأثیر بارزی بر خواص مکانیکی آن‌ها دارند [1,2]. توزیع حجمی دانه‌ها معمولاً به دو روش بررسی می‌شود: برآورد کسر حجمی دانه‌های متعلّق به یک محدوده حجمی باریک، $f_v(v)$ (The volume weighted distribution of grain volume)، و برآورد تعداد نسبی دانه‌های متعلّق به یک محدوده حجمی باریک، $f_N(v)$ (The number-weighted distribution of grain volume) [3]. پنج رابطه برای روش دوّم پیشنهاد شده است، و این رابطه‌ها در جدول (۱) آورده شده‌اند. در این رابطه‌ها، از حجم و یا حجم نرماله شده (نسبت حجم دانه به حجم میانگین) استفاده شده است [3-8]. در اغلب موارد تابع توزیع هیلرت با داده‌های تجربی تطابق خوبی ندارد [6]. تابع لوت یا ریلی نیز حالت خاصی از تابع ویبُل با β=۲ است [7]. به این ترتیب، سه تابع توزیع نرمال لگاریتمی، ویبُل و گاما در این تحقیق برای مقایسه با داده‌های تجربی استفاده شدند.

یکنواختی اندازه‌ی دانه‌ها را می‌توان با وارینس یا انحراف معیار حجم دانه‌ها بررسی کرد. امّا اغلب انحراف معیار نسبت به اندازه یا حجم میانگین نرماله می‌شود. در این صورت، آن را ضریب انحراف (CV, Coefficient of variation) نامیده و به‌صورت زیر تعریف می‌شود [9]:

$$\bar{x} = \langle x \rangle = \sum x_i / N$$
$$\sigma_x = \left(\frac{\sum (x_i - \bar{x})^2}{N} \right)^{1/2} = \sqrt{\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2} \qquad (۱)$$
$$CV_x = \sigma_x / \bar{x}$$

که در آن، x شعاع یا حجم دانه، $\bar{x}$ مقدار میانگین x، و σ_x انحراف معیار می‌باشد. از علامت < > در این مقاله برای نمایش مقدار میانگین استفاده شده است.

مطابق با روش جنسن و گاندرسن، [10]، می‌توان حجم میانگین $\langle V_v \rangle$ و ضریب انحراف CV_v را با استفاده از یک مقطع متالوگرافی به‌دست آورد. دانه‌ها در این روش به وسیله‌ی رأس‌های یک شبکه‌ی مربعی انتخاب می‌شوند. مساحت این دانه‌ها (a) و طول خط افقی عبور داده شده از نقطه‌های درون دانه‌ی (l) اندازه‌گیری شده و رابطه‌های زیر به‌دست می‌آیند:

$$\langle V_v \rangle = \frac{\pi}{3} \langle l^3 \rangle \qquad (۲)$$

$$CV_v = \left[\frac{36k \langle a^3 \rangle}{\pi \langle l^3 \rangle^2} - 1 \right]^{1/2} \qquad (۳)$$

k ثابتی است که به شکل دانه‌ها وابسته است و مقدار آن بین ۰/۰۷۱ تا ۰/۰۸۳ تغییر می‌کند. در تحقیق حاضر از مقدار متوسط ۰/۰۷۷ استفاده شده است.

با محاسبه‌ی $\langle V_v \rangle$ و CV_v به‌روش فوق، $\langle V_N \rangle$، CV_N و عوامل مربوط به توابع توزیع را می‌توان با استفاده از رابطه‌های جدول (۲) به‌دست آورد.

روش‌های مدل‌سازی نیز می‌توانند توزیع حجمی دانه‌ها را تعیین کنند. در این تحقیق از روش مدل‌سازی سه بعدی مونت‌کارلو و مدل آماری ابراز- لوک، [12,13]، استفاده شده است. در روش اخیر، فرض بر این است که دانه‌ها از نقطه نظر اندازه شامل توزیعی از n گروه هستند و هر گروه دارای n_i دانه با شعاع معادل R_i می‌باشد. با این فرض، رابطه‌ی زیر برای رشد دانه پیشنهاد شده است [12]:

$$\frac{dR_i}{dt} = M \sum_{j=1}^{n} P_{i,j}\, S_j, \quad P_{i,j} = 2\gamma \left(\frac{1}{R_j} - \frac{1}{R_i} \right) \qquad (٤)$$

در این رابطه‌ها، γ انرژی سطحی مرز دانه و R_i شعاع معادل دانه‌ی iام است. M نیز تحرک (Mobility) مرز دانه است که از رابطه‌ی زیر محاسبه می‌شود:

$$M = M_0 \exp\left(-\frac{Q_{gb}}{RT} \right) \qquad (٥)$$

جدول ۱ رابطه‌های آماری توزیع اندازه‌ی دانه برای $f_N(v)$

نام تابع	تابع	اطلاعات بیش‌تر
نرمال لگاریتمی [۵,۳]	$f(v)=\frac{1}{Av\sqrt{2\pi}}\exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln(v)-B}{A}\right)^2\right]$	A و B به‌ترتیب انحراف معیار و میانگین لگاریتم حجم نرماله شده (v) هستند
ویبُل [٦]	$f(v)=\frac{\beta}{\alpha^\beta}v^{\beta-1}\exp\left[-\left(\frac{v}{\alpha}\right)^\beta\right]$	β عامل شکل و $\alpha=1/\Gamma(1+1/\beta)$ عامل اندازه است (Γ تابع گاما می‌باشد)
گاما [۵]	$f(v)=\frac{v^{a-1}}{b^a\,\Gamma(a)}\exp\left(-\frac{v}{a}\right)$	ab و ab^2 میانگین و واریانس توزیع، Γ تابع گاما و v حجم نرماله شده است
هیلرت [٦]	$f(r)=(2e)^2\frac{2r}{(2-r)^4}\exp\left(-\frac{4}{2-r}\right)$	با داده‌های تجربی تطابق خوبی ندارد. r قطر معادل نرماله شده است
لوت [۷]، یا ریلی [۸]	$f(v)=2\kappa v\exp(-\kappa v^2)$	همان تابع ویبُل با $\beta=2$ است، به‌گونه‌ای که $\kappa=(\Gamma(1+1/\beta))^2$. در تابع ریلی به‌جای ضریب 2κ از $\frac{8}{3\sqrt{\pi}}\kappa^{5/2}$ استفاده می‌شود

جدول ۲ ارتباط بین $\langle V_v\rangle$ و CV_v با $\langle V_N\rangle$، CV_N و عوامل توابع توزیع در رابطه‌های مختلف

تابع گاما[۱*][۵]	تابع لگاریتمی[۱*][۵]	تابع ویبُل[۱*،۲*]
$\langle V_N\rangle=2\langle V_v\rangle-\frac{\langle V_v^2\rangle}{\langle V_v\rangle}$ ۳*	$\langle V_N\rangle=\frac{\langle V_v\rangle^3}{\langle V_v^2\rangle}$ ۳*	$\langle V_v\rangle=2\alpha\frac{\Gamma(2/\beta)}{\Gamma(1/\beta)}$
$CV_N=\frac{CV_v}{\sqrt{1-CV_v^2}}$	$CV_N=CV_v$	$CV_v=\sqrt{\frac{3}{4}\frac{\Gamma(1/\beta)\Gamma(3/\beta)}{\Gamma^2(2/\beta)}-1}$
$a=\frac{1}{CV_N^2}$	$A=\sqrt{\ln(1+CV_N^2)}$	$\langle V_N\rangle=\frac{\alpha}{\beta}\Gamma(1/\beta)$
$b=\frac{\langle V_N\rangle}{a}$	$B=\ln\langle V_N\rangle-0.5A^2$	$CV_N=\sqrt{2\beta\frac{\Gamma(2/\beta)}{\Gamma^2(1/\beta)}-1}$

۱* در سه رابطه، به‌جای حجم نرماله شده (v) از حجم (V) استفاده شده است.

۲* رابطه‌های تابع ویبُل به وسیله‌ی نویسنده‌ی مقاله به‌دست آمده است. α و β از دو معادله‌ی اول و رابطه‌های (۲) و (۳) به‌دست می‌آید.

۳* $\langle V_v^2\rangle=4\pi k\langle a^3\rangle=\langle V_v\rangle^2(1+CV_v^2)$

که در آن، $M_0=b^2D_0/kT$، b اندازه‌ی بردار برگرس، D_0 ثابت نفوذ، k ثابت بولتزمن، R ثابت جهانی گازها، Q_{gb} انرژی فعال‌سازی جابجایی مرز و T دما بر حسب کلوین است.

در رابطه‌ی (٤)، $P_{i,j}$ نیروی محرکه برای رشد دانه‌ای به شعاع R_i در مقابل دانه‌هایی به شعاع R_j می‌باشد، به‌طوری که اگر مثبت باشد دانه‌های به شعاع R_i رشد می‌کنند و اگر منفی باشد، این دانه‌ها کوچک‌تر می‌شوند. افزون بر این، S_j احتمال برخورد دانه‌های متعلّق به گروه‌های مختلف می‌باشد که با سطح دانه‌ها در ارتباط است، یعنی:

$$S_j = \frac{n_j.4\pi R_j^2}{\sum_j n_j.4\pi R_j^3} = \frac{n_j.R_j^2}{\sum_j n_j.R_j^2} \quad (٦)$$

رابطه‌ی (٤) در هر گام زمانی برای همه‌ی شعاع‌های R_i موجود به‌کار می‌رود تا این‌که توزیع اندازه‌ی دانه (با فرض توزیع حجمی دانه‌ها، $V_i = \frac{4\pi}{3}R_i^3$) حین تاب‌کاری به‌دست آید. داده‌های مورد نیاز برای مدل‌سازی در جدول (۳) دیده می‌شوند [14,17].

جدول ۳ تحرک‌پذیری، انرژی فعال‌سازی نفوذ مرزدانه‌ای و انرژی سطحی برای سه فولاد مورد استفاده

نوع فولاد	M_o (m^4/J.s)	Q_{gb} (kJ/mol)	γ (mJ/m^2)
304H [١٤،١٥]	۱×۱۰^{-۵}	۱۷۸	۳۰
316L [١٤-١٦]	۳×۱۰^{-٦}	۱٦۹	۷۸
321 [۱۷]	۵×۱۰^{-٦}	۱۷۲	۵۲

نتایج توزیع حجمی دانه‌ها که با استفاده از سه روش فوق به‌دست می‌آیند، می‌باید با یک روش استاندارد و دقیق مقایسه شوند. روش مقطع زدن متوالی [4] برای این منظور به‌کار رفت. در این روش سطح مقطع نمونه متالوگرافی شده و از آن عکس گرفته می‌شود. سپس از سطح نمونه به‌میزان ۱ درصد از اندازه‌ی بزرگ‌ترین دانه لایه‌برداری شده و پس از متالوگرافی مجدد، از آن عکس‌برداری می‌شود. این‌کار تا عمقی به‌میزان دو برابر قطر بزرگ‌ترین دانه انجام می‌شود. پس از آن، توزیع حجمی دانه‌ها با بررسی عکس‌های متوالی به‌دست می‌آید.

در این کار تحقیقی، از چهار روش جنسن–گاندرسن، شبیه‌سازی سه بعدی مونت‌کارلو، مدل ابراز–لوک و مقطع‌زنی متوالی برای بررسی توزیع اندازه‌ی دانه حین فرایند رشد دانه در سه فولاد زنگ نزن آستنیتی نوع ۳۰٤H، ۳۱٦L و ۳۲۱ استفاده شده است. هدف به‌دست آوردن یک روش ساده و در عین حال دقیق برای تخمین حجم متوسط و توزیع حجمی دانه‌های در حال رشد بوده است. محاسبه‌ی توزیع حجمی دانه‌ها به‌عنوان ابزاری برای تشخیص وقوع رشد غیرعادی دانه‌ها حین فرایند تاب‌کاری به‌کار می‌رود. رشد غیرعادی دانه‌ها در نتیجه‌ی وجود رسوب‌های بسیار ریز بر روی مرزدانه‌ها و یا در نتیجه‌ی تبلور مجدد به‌وقوع می پیوندد.

روش تحقیق

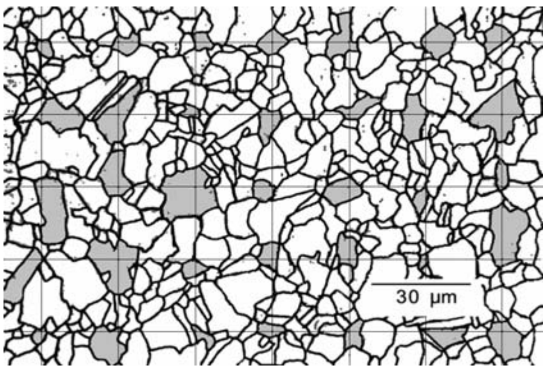
ترکیب شیمیایی سه نوع فولاد زنگ نزن آستنیتی، AISI ۳۰٤H، ۳۱٦L و ۳۲۱ در جدول (٤) آمده است. به‌منظور بررسی رشد طبیعی دانه، دو نوع فولاد اول در دمای ۱۲۰۰ °C به‌مدت زمان ۵، ۱۰ و ۱۵ دقیقه تاب‌کاری شدند. در فولاد ۳۲۱ حدود ۰/۸ درصد تیتانیم وجود دارد که می‌تواند در محدوده دمایی ۱۲۵۰°C–۱۱۰۰ با تشکیل نیترید تیتانیم حرکت مرز دانه‌ها را مشکل کرده و باعث رشد غیر عادی دانه‌ها شود [18]. بنابراین، دمای تاب‌کاری این فولاد به ۱۳۰۰°C افزایش داده شد. بعد از فرایند تاب‌کاری، سطح مقطع نمونه‌ها متالوگرافی شده و ریزساختار آن‌ها به‌وسیله‌ی حکّاکی الکترولیتی در محلول اشباع اسید نیتریک، آشکار شد. سپس برای ارزیابی توزیع حجمی دانه‌ها، مقطع‌زنی متوالی انجام شد و با سه روش دیگر ذکر شده در مقدمه مقایسه شد.

جدول ٤ ترکیب شیمیایی سه نوع فولاد زنگ نزن آستنیتی به کار رفته در این تحقیق (درصد وزنی)

عنصر	۳۰٤H	۳۱٦L	۳۲۱
C	۰/۰۸۳	۰/۰۲٦	۰/۰٦٦
Cr	۱۹/۲	۱۷/٦	۱۷/٤
Ni	۸/۱٦	۱۰/۹	۹/۷۵
Mo	۱/۵٤۲	۱/۸۸	<۰/۰۵
Si	۰/۳۳۵	۰/۳٦٦	۰/۵۹٦
Mn	۱/۸۸	۱/۹٤	۱/٦۵
Ti	۰/۰۸۲	۰/۰۷۹	۰/۷۸٦
P	۰/۰۲۱	۰/۰٤۵	۰/۰۱۹
S	<۰/۰۳	<۰/۰۳	<۰/۰۳

نتایج و بحث

در شکل (۱)، ریزساختار اولیه‌ی فولاد زنگ نزن آستنیتی ۳۱٦L قبل از فرایند تابکاری نشان داده شده است. در اینجا، مقادیر $\langle V_v \rangle$ و CV_v به‌کمک رابطه‌های (۲) و (۳) محاسبه شده‌اند. قطر متوسط معادل دانه‌ها با فرض کروی بودن آن‌ها از رابطه‌ی $\overline{D}_v = \left(\frac{6}{\pi}\langle V_v \rangle\right)^{1/3}$ و قطر معادل مطابق روش تقاطع از رابطه‌ی $\overline{D}_{int} = \overline{D}_v / 1.68$ [۱۹] محاسبه می‌شود. به همین روش مقادیر $\overline{D}_{int}$ و CV_v برای همه‌ی ریزساختارها به‌دست آمد، و نتایج در جدول (۵) نشان داده شده‌اند.



شکل ۱ ریزساختار اولیه‌ی فولاد ۳۱٦L که به‌کمک رابطه‌های (۲) و (۳) به‌دست آمده است؛ $\langle V_v \rangle =$ ٦۲٤ μm^3 و $CV_v =$ ۰/٤۹

جدول ۵ مقادیر $\overline{D}_{int} = \frac{1}{1.68}\left(\frac{6}{\pi}\langle V_v \rangle\right)^{1/3}$ و CV_v که به‌کمک رابطه‌های (۲) و (۳) برای فولادهای مختلف محاسبه شده‌اند

شرایط تابکاری		۳۰٤H	۳۱٦L	۳۲۱
قبل از تابکاری	$\overline{D}_{int}(\mu m)$	۷	٦/۳	۸
	CV_v	۰/۳۵	۰/٤۹	۰/۳۲
۵ دقیقه بعد از تابکاری	$\overline{D}_{int}(\mu m)$	۲٦/۸	٤۲/۸	٤۵
	CV_v	۱/۱	۰/٤۲	۰/۵۲
۱۰ دقیقه بعد از تابکاری	$\overline{D}_{int}(\mu m)$	٤۳/٤	۵۸	۷۲
	CV_v	۱/۹	۰/۵٦	۰/۷۲
۱۵ دقیقه بعد از تابکاری	$\overline{D}_{int}(\mu m)$	۵۵	۷۰	۸۲
	CV_v	۱/۷	۰/٤۷	۰/٤٤

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، ضریب انحراف حجمی در نمونه‌های ۳۱٦L و ۳۲۱ کم‌تر از یک (حدود ۰/۸ - ۰/٤) و در نمونه‌های ۳۰٤H بزرگ‌تر از یک است، و این به‌معنای پراکندگی زیاد در اندازه‌ی دانه‌ها در این فولاد است.

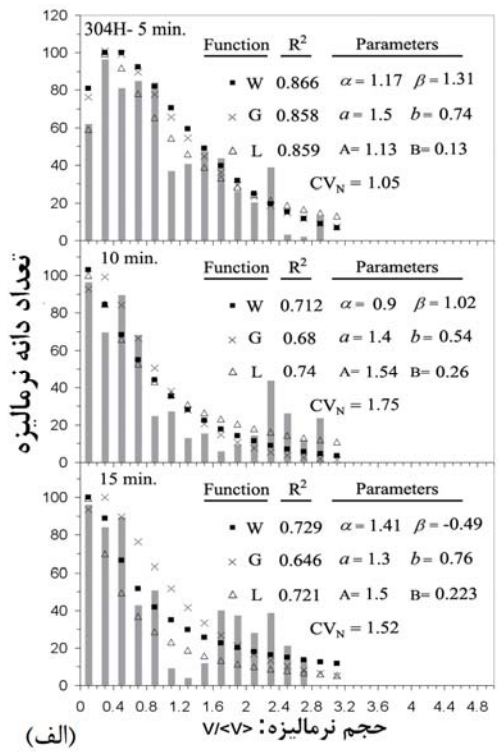
نتایج بررسی توزیع حجمی نمونه‌ها که به‌روش مقطع‌زنی متوالی به‌دست آمده است، در شکل (۲) مشاهده می‌شود. تابع‌های توزیع در این نمودارها نیز رسم شده‌اند. عوامل این تابع‌ها از روش حداقل مجموع مربعات (Least square method) به‌دست آمده‌اند.

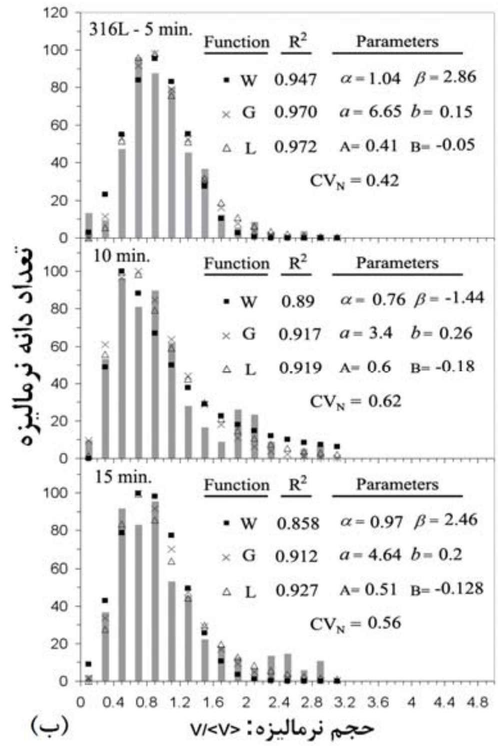
در شکل (۲) نیز دیده می‌شود که توزیع حجمی دانه‌ها بر تابع توزیع نرمال لگاریتمی و تابع گاما نسبتاً منطبق است، و بنابراین می‌تواند به‌وسیله‌ی هر دو تابع توصیف شود. در این‌صورت، اگر توزیع حجم بر حسب حجم نرماله شده ($v_N = V_N / \langle V_N \rangle$) رسم شود، عوامل تابع توزیع گاما برابر خواهند بود با: ٦~۲= a و ٤~۰/۱۵=b، و عوامل تابع توزیع نرمال لگاریتمی نیز برابر با ۰/۷~۰/٤= A و (۰/۲٤۵-)~(۰/۰۸-) = B به‌دست خواهند آمد ($\langle v_N \rangle = 1$، ۰/۸- ۰/٤ = CV_N).

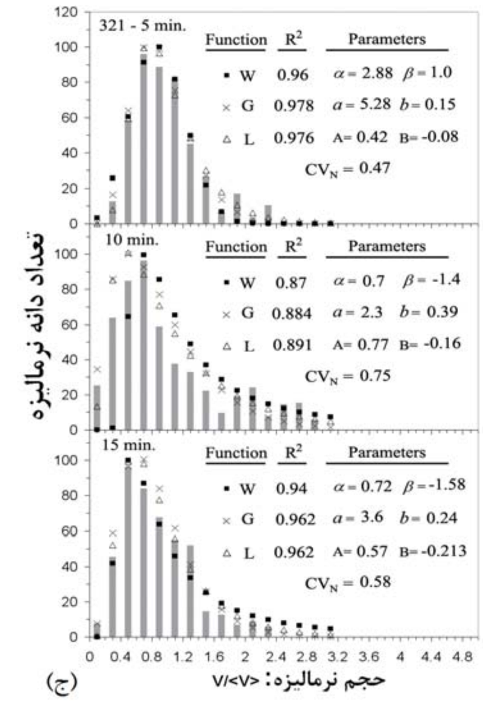
برنامه‌ی روش سه بعدی مونت‌کارلو برای رشد

دانه نیز نوشته شد. در این برنامه، یک شبکه‌ی ۲۰۰×۲۰۰×۲۰۰ پیکسلی (هر پیکسل برابر با پنج میکرومتر) با Q=۴۰۰۰ (تعداد جهت‌گیری تصادفی در شبکه) در نظر گرفته شد. همسایه‌های درجه اول انتخاب شدند (۲۶ همسایه)، و برنامه تا حالت مونت‌کارلوی (MCS) برابر با ۱۵۰۰ (هر حالت به اندازه‌ی $۲۰۰^۳$ انتخاب نقطه) ادامه یافت. هر مرحله سه بار تکرار شد تا این‌که خطای آماری کاهش یابد. برنامه در محیط نرم‌افزار متلب (MATLAB) به‌شکل کد موازی نوشته شد و با استفاده از رایانه‌ی مناسب در مرکز محاسبات پیشرفته‌ی دانشگاه صنعتی اصفهان اجرا شد. ریزساختار به‌دست آمده بعد از اجرای ۸۰۰ حالت ($D_{int} \approx$ ۸۰ μm)، در شکل (۳) نشان داده شده است.

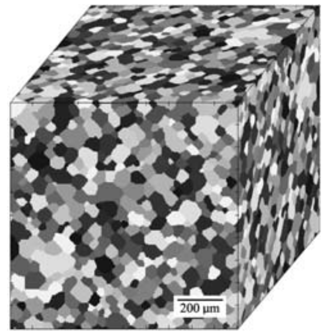
ضریب انحراف حجمی در روش مونت‌کارلو بعد از اجرای ۶۰۰ حالت، به‌سمت مقدار متوسط ۰/۵۲ میل می‌کند. در شکل (۴- الف و ب)، توزیع حجمی دانه‌های حاصل از روش مونت‌کارلو و مدل ابراز- لوک با تابع‌های توزیع مقایسه شده‌اند.



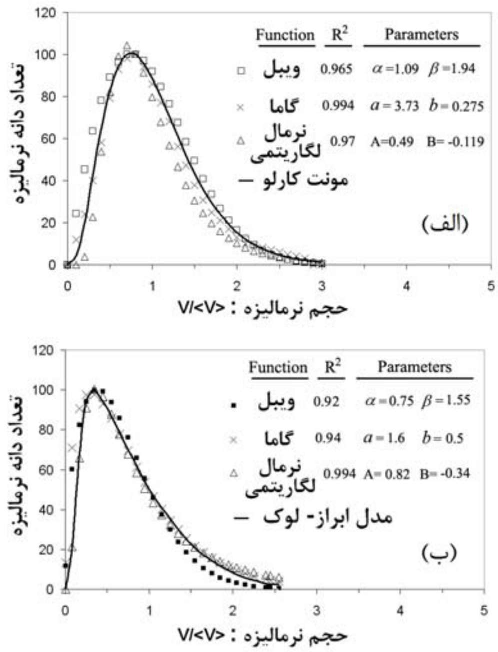




شکل ۲ نتایج بررسی توزیع حجمی نمونه‌ها به‌روش مقطع‌زنی متوالی (نمودار میله‌ای) و مقایسه‌ی آن‌ها با تابع‌های توزیع در سه فولاد مورد آزمایش؛ (الف): ۳۰۴H، (ب): ۳۱۶L، و (پ): ۳۲۱. W: تابع ویبُل، G: تابع گاما، و L: تابع نرمال لگاریتمی



شکل ۳ ریزساختار شبیه‌سازی شده به‌وسیله‌ی روش مونت‌کارلو بعد از اجرای ۸۰۰ حالت ($D_{int} \approx$ ۸۰ μm)



شکل ٤ نتایج توزیع حجمی دانه‌ها در دو روش شبیه‌سازی مونت‌کارلو (الف)، و مدل ابراز- لوک (ب) و مقایسه‌ی آن‌ها با تابع‌های توزیع

مقدار CV_N در مدل ابراز- لوک برابر با ۰/۹٦ تخمین زده شد که در مقایسه با مقدار تجربی آن در نمونه‌های ۳۱٦L و ۳۲۱، از حد بالایی بزرگ‌تر است. بنابراین، تخمین درستی از توزیع اندازه دانه به‌دست نخواهد آمد. افزون بر این، در شکل (٤) دیده می‌شود که روش مونت‌کارلو بر توزیع گاما و مدل ابراز- لوک بر توزیع نرمال لگاریتمی منطبق است.

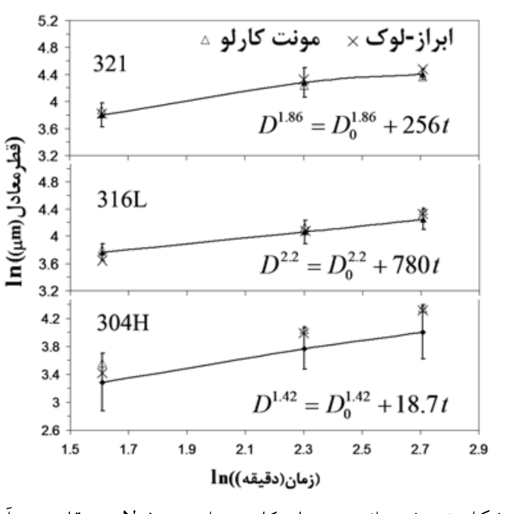
نکته‌ی دیگری را که می‌توان در مورد مدل‌های فوق بررسی کرد، کینتیک رشد دانه است. رابطه‌ی رشد دانه به‌شکل زیر ارائه شده است [20,21]:

$$D^n = D_0^n + kt, \quad n \in (1-6) \qquad (۷)$$

که در آن، n ثابت ماده و k عامل وابسته به دما می‌باشد. شکل ۵ کاربرد رابطه‌ی فوق را برای سه فولاد مورد مطالعه نشان می‌دهد. برای هر فولاد و با فرض حاکم بودن توزیع نرمال لگاریتمی، انحراف معیار لگاریتم حجم ($A = \sigma_V$) از مقادیر جدول (۵) و رابطه‌های جدول (۲) به‌دست آمده‌اند. اگر حجم دارای توزیع نرمال لگاریتمی باشد، قطر معادل نیز توزیع نرمال لگاریتمی دارد، امّا انحراف معیار لگاریتم قطر معادل برابر با $\frac{1}{3}\sigma_V$ خواهد بود [22]. در این‌صورت، لگاریتم قطر معادل در روش تقاطع به‌همراه انحراف معیار برابر است با:

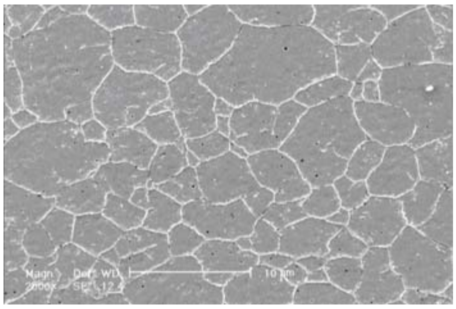
$$\ln(\overline{D}_{int}) \pm \tfrac{1}{3}\sigma_V = \ln(\overline{D}_{int} \times \exp(\pm\tfrac{1}{3}\sigma_V)) \approx \ln(\overline{D}_{int}(1 \pm \tfrac{1}{3}\sigma_V)) \qquad (۸)$$

این معادله پس از اعمال تقریب $e^x \approx 1 + x$ به‌ازای مقادیر کوچک x به‌دست آمده است. بنابراین، $\frac{1}{3}\sigma_V$ انحراف معیار قطر معادل $\overline{D}_{int}$ می‌باشد که در عبارت خطا در شکل (۵) وارد شده است. به‌منظور مقایسه، مقادیر اندازه دانه‌ی پیش‌بینی شده با استفاده از روش مونت‌کارلو و مدل ابراز- لوک در شکل (۵) آورده شده‌اند.



شکل ۵ رشد دانه حین تاب‌کاری برای سه فولاد و مقایسه‌ی آن با روش مونت‌کارلو و مدل ابراز- لوک

همان‌گونه که مشاهده می‌شود، رفتار رشد دانه در هر سه فولاد از رابطه‌ی (۷) پیروی می‌کند. تلُرانس اندازه دانه در مورد فولاد ۳۰٤H، به‌دلیل $CV_v > 1$، زیاد است. افزون بر این، هر دو روش مونت‌کارلو و مدل ابراز- لوک اندازه دانه‌ی بزرگ‌تری را در این فولاد حین تاب‌کاری پیش‌بینی می‌کنند. برای یافتن دلیل این رفتار، نمونه‌ی اولیه از این فولاد مورد بررسی قرار گرفت. ریزساختار اولیه‌ی این فولاد در شکل (٦) مشاهده می‌شود. حضور کاربیدهای کرُم در مرزدانه‌ها کاملاً مشخص است.



شکل ٦ ریزساختار اولیه‌ی فولاد ۳۰٤H بعد از حکّاکی در اسید اگزالیک. کاربیدهای کرُم بر روی مرز دانه‌ها حضور دارند

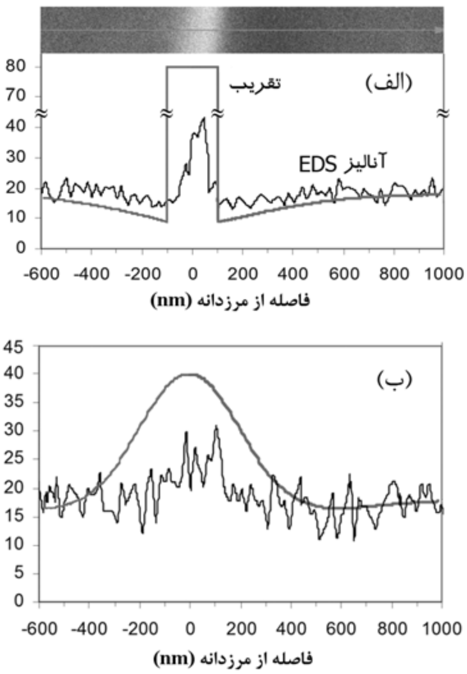
این کاربیدها در دمای تاب‌کاری (۱۲۰۰°C) به‌سرعت حل می‌شوند، امّا جدایش کرُم تحرک‌پذیری مرز را با سازوکار پس زدن عنصر محلول (Solute drag) کاهش می‌دهد. از آنجا که انرژی جدایش و ضریب نفوذ کرُم در این فولاد بسیار کم می‌باشند (به‌ترتیب ۱ kJ/mol و $۱۰^{-۱۵}$ cm²/s، [۲۳])، فرایند همگن‌سازی در آن کند بوده و جدایش تا مدت زمان زیادی وجود دارد.

تغییر غلظت کرُم در راستای عمود بر مرز دانه را می‌توان به‌صورت زیر تخمین زد [24]:

$$C_x = C_i + (C_{Bulk} - C_i)\,\mathrm{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right) \qquad (۹)$$

در این رابطه، C_i و C_{Bulk} به‌ترتیب غلظت‌های کرُم در فصل مشترک کاربید/ زمینه (قبل از انحلال کاربید) و در میان دانه هستند. این معادله، با فرض این‌که جامد نیمه بی‌نهایت است، غلظت کروم (C_x) را در فاصله‌ی x از فصل مشترک به‌دست می‌دهد.

با بررسی ترکیب شیمیایی با استفاده از روش طیف‌سنجی توزیع انرژی (EDS) در میکروسکپ الکترونی روبشی مقادیر $C_i \approx$ ٪۹، $C_{Bulk} =$ ٪۱۸ و $C_x =$ ٪۱۳ به ازای $x =$ ۲۰۰ nm به‌دست آمدند. افزون بر این، غلظت کرُم در ذرات کاربید $M_{23}C_6$ برابر با ۸۵~۷۵ درصد وزنی (۸۰ درصد به‌طور میانگین) است [25,26]، و ضخامت لایه‌ی کاربید تقریباً ۲۰۰ nm می‌باشد (شکل (۷- الف)). البته چون قطر پرتوی الکترونی در حدود ۵۰۰ nm بود، تعیین ترکیب شیمیایی در مجاورت کاربید دقّت زیادی ندارد، امّا الگوی کلی با نمودار غلظت مربوط به معادله‌ی (۹) یکی است.



شکل ۷ نمودارهای غلظت کرُم در فولاد ۳۰٤H به دست آمده با اندازه‌گیری‌های SEM-EDS؛ (الف): نمونه‌ی اولیه، (ب): پس از پنج دقیقه تاب‌کاری در دمای ۱۲۰۰ °C به‌همراه تخمین‌های ارائه شده

با جای‌گذاری غلظت‌های فوق در معادله‌ی (۹)، نمودار غلظت کرُم در نمونه قبل از عملیات تاب‌کاری به‌دست می‌آید (مربوط به زمان صفر در شکل (۸))، و این شرایط اولیه را برای حل عددی مسئله مشخص می‌کند. از معادله‌ی دوم نفوذ فیک و روش حل اختلاف محدود برای یافتن نمودارهای غلظت کرُم در زمان‌های مختلف تاب‌کاری در دمای ۱۲۰۰ $^{\circ}C$ استفاده شد (شکل (۸)، $t>0$). دو شرط مرزی برای حل عددی مسئله لازم است. یک شرط از این فرض که نمودار غلظت کرُم در دو طرف مرز متقارن است، به‌دست آمد، و برای شرط دوم، با توجه به شکل (۷- الف)، فرض شد که غلظت کرُم در فاصله‌ی ۱۰۰۰ نانومتری برابر با غلظت کرُم درون زمینه باشد. به‌این ترتیب، معادله‌ی زیر برای غلظت کرُم به‌وسیله‌ی روش اختلاف محدود حل شد:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_{Cr}\frac{\partial^2 C}{\partial x^2},\ D_{Cr}(1200\,^{\circ}C) \approx 0.1\ nm^2/s$$
$$C(x \le 100, t=0) = 0.8$$
$$C(x > 100, t=0) = 0.09\big(1+\mathrm{erf}((x-100)/480)\big)$$
$$\partial C/\partial x|_{(x=0,t)} = 0\ ,\ C(1000,t) = 0.18$$
(۱۰)

در شکل (۷- ب)، نتیجه‌ی این روش با نتایج تجربی حاصل از بررسی طیف‌سنجی توزیع انرژی برای نمونه‌ای که ۵ دقیقه تاب‌کاری شده است، مقایسه شده است. با این تقریب‌زنی، غلظت کرُم در مرزدانه ($C_{(x=0,t)} = C_t$) در زمان‌های مختلف تاب‌کاری به‌دست آمد، و نتیجه با دقّت خوبی با معادله‌ی زیر تطابق داشت:

$$C_t = C_{Bulk} + (C_{Carbide} - C_{Bulk})\exp(-kt) \qquad (۱۱)$$

که در آن، $C_{Carbide}$ غلظت کرُم در کاربید $M_{23}C_6$ می‌باشد که برابر با ۸۰ درصد فرض شده است [26]. این رابطه مشابه با معادله‌ی همگن‌سازی فوریه است [27]. مقدار k با رسم نمودار تغییرات $-\ln[(C_t - C_{bulk})/(C_{carbide} - C_{bulk})]$ بر حسب زمان تاب‌کاری t، برابر با ۰/۰۰۵ s^{-1} به‌دست آمد.

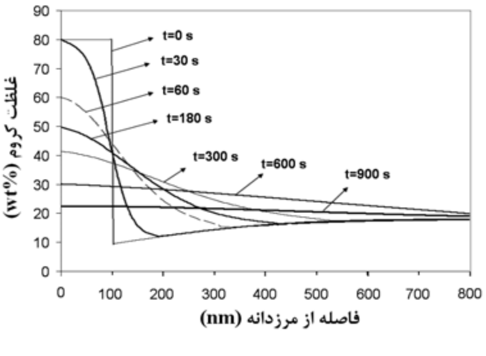
با فرض عدم تأثیر عناصر محلول بر روی یکدیگر، نشان داده شده است که اگر غلظت عنصر محلول در مرز دانه به‌اندازه‌ی ΔC بیش از زمینه باشد، عنصر محلول با سازوکار کشش (Solute drag effect) تحرک مرز را به‌اندازه‌ی ΔM کاهش می‌دهد. ΔM از معادله‌ی خطی زیر به‌دست می‌آید [28]:

$$\frac{\Delta M}{\Delta C} = -\Gamma \qquad (۱۲)$$

در این رابطه، Γ ثابت وابسته به اندازه‌ی دانه و انرژی جدایش است، و $\Delta M = M_t - M_\infty$ و $\Delta C = C_t - C_{Bulk}$ می‌باشند. بنابراین، رابطه‌ی تحرک مرز با زمان تاب‌کاری را می‌توان با استفاده از رابطه‌های (۱۱) و (۱۲) به‌صورت زیر نوشت:

$$M_t = M_\infty(1 - p.\exp(-kt)) \qquad (۱۳)$$

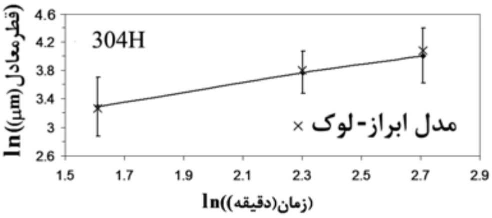
که در آن، $p = (C_{Carbide} - C_{Bulk})\Gamma/M_\infty$ و M_∞ تحرک مرز دانه بدون تأثیر جدایش است. M_∞ به‌کمک معادله‌ی (۵)، برابر با $m^4/J.s$ ۵/۷۶×۱۰$^{-۱۲}$ به‌دست آمد.



شکل ۸ نمودار تغییرات غلظت کرُم در فولاد ۳۰۴H در زمان‌های مختلف تاب‌کاری که از حل عددی معادله‌ی نفوذ فیک به‌روش اختلاف محدود به‌دست آمده است.

با در نظر گرفتن نمودار شکل (۸)، می‌توان فرض کرد که جدایش کرُم در زمینه پس از ۱۵ دقیقه آن‌چنان کم شود که در نتیجه‌ی آن تحرک مرز دانه به $0/99\,M_\infty$ برسد. با این فرض، مقدار p برابر با ۰/۹

به‌دست می‌آید. در شکل (۹)، نتایج کاربرد این رابطه برای تحرک مرز دانه در مدل ابراز- لوک (به جای M در معادله‌ی (٤)) به‌منظور پیش‌بینی اندازه دانه‌ی میانگین در فولاد ۳۰٤H مشاهده می‌شود. با مقایسه‌ی این نتایج با نتایج در شکل (٥)، دیده می‌شود که تطابق بین این دو سری نتایج تجربی بسیار بهتر شده است.



شکل ۹ مقایسه‌ی رشد دانه حین فرایند تاب‌کاری در فولاد ۳۰٤H با نتایج به‌دست آمده از مدل ابراز- لوک، با کاربرد معادله‌ی (۱۳) برای تحرک مرز دانه

نتیجه‌گیری

۱- ضریب انحراف توزیع حجمی (CV_v) حین فرایند رشد معمولی دانه در فولادهای زنگ نزن آستنیتی نوع ۳۱٦L و ۳۲۱ بین ۰/۸-۰/٤ به‌دست آمد، در حالی‌که این مقدار در فولاد ۳۰٤H با رشد غیر عادی دانه بزرگ‌تر از یک بود.

۲- نتایج توزیع حجمی دانه‌ها در روش مقطع‌زنی متوالی با در نظر گرفتن حجم نرماله شده بر تابع توزیع نرمال لگاریتمی با مقادیر ۰/۷~۰/٤ = A و (۰/۲٤٥-)~(۰/۰۸-) = B، و نیز بر تابع گاما با مقادیر ٦~۲ = a و ۰/٤~۰/۱٥ = b منطبق است.

۳- توزیع حجمی در روش مونت‌کارلو بر توزیع گاما با CV_N ~ ۰/٥۲، و در مدل ابراز- لوک بر توزیع نرمال لگاریتمی با ۰/۹٦ ~ CV_N منطبق است. بنابراین، روش اخیر تخمین درستی از توزیع اندازه دانه به دست نمی‌دهد.

٤- با تخمین غلظت کرُم در فصل مشترک زمینه و کاربید کرُم در زمان‌های مختلف تاب‌کاری در فولاد ۳۰٤H از نوع حساس شده، یک رابطه‌ی زمانی برای تحرک مرز دانه به‌دست آمد.

٥- با تخمین ضریب انحراف حجمی (CV_v) به‌روش جنسن و گاندرسن با استفاده از یک مقطع متالوگرافی و فرض برقراری توزیع نرمال لگاریتمی و یافتن انحراف معیار حجمی ($\sigma_V = \sqrt{\ln(1+CV_v^2)}$)، انحراف معیار قطر معادل در روش تقاطع را می‌توان از رابطه‌ی $\frac{1}{3}\sigma_V$ به‌دست آورد.

مراجع

1. Kuck, D., Niewielski, G., and Cwajna, J., "Influence of Deformation Parameters and Initial Grain Size on the Microstructure of Austenitic Steels after Hot-Working Processes", *Mat. Characterization*, 56, pp. 318–324, (2006).
2. El Wahabi, M., Gavard, L., Montheillet, F., Cabrera, J. M., and Prado, J. M., "Effect of Initial Grain Size on Dynamic Recrystallization in High Purity Austenitic Stainless Steels", *Acta Materialia*, 53, pp. 4605–4612, (2005).
3. Yin, F., Sakurai, A., and Song, X., "Determination of Spatial Grain Size with the Area-Weighted Grain Area Distribution of the Planar Sections in Polycrystalline Materials", *Metall. Mater. Trans. A*, 37, p. 3707, (2006).
4. Rhines, F.N., Craig, K.R., and Rousse, D.A., "Measurement of Average Grain Volume and Certain Topological Parameters by Serial Section Analysis", *Metall. Trans. A*, 7, pp. 1729–1734, (1976).

5. Yu, H., Liu, G., and Song, X., "On the Relation between the Number-Weighted and Volume-Weighted Grain Volume Distribution Parameters", *Metall. Mater. Trans. A*, 29, p. 3081, (1998).
6. Wang, C., and Liu, G., "Grain Size Distribution Obtained from Monte Carlo Simulation and the Analytical Mean Field Model", *ISIJ Int*., 43, pp. 774–776, (2003).
7. Sun, Y., Liu, G., and Wang, C., "On the Grain Size Distributions Obtained from Different Grain Growth Simulation Techniques", *J. Mat. Sci*., 39, pp. 2553–2556, (2004).
8. Gusak, A. M., and Tu, K. N., "Theory of Normal Grain Growth in Normalized Size Space", *Acta Materialia*, 51, pp. 3895–3904, (2003).
9. Liu, G., and Yu, H., "On the Sampling of Serial Sectioning Technique for Three Dimensional Space-Filling Grain Structures", *Image Anal Stereol*, 19, pp. 81−84, (2000).
10. Kurzydtowski, K.J., and Bucki, J.J., "A Method for Grain Size and Grain Size Uniformity Estimation- Application to Polycrystalline", *Scripta Metall*,. 27, pp. 117−120, (1992).
11. Matsuura, K., Itoh, Y., Kudoh, M., Ohmi, T., and Ishii, K., ‘Three-Dimensional Grain Size Distribution in SUS304 Stainless Steel", *ISIJ Int*., 34, pp. 186−190, (1994).
12. Abbruzzese, G., and Lucke, K., *Acta. Metall*., 34, p. 905, (1986).
13. Schino, A. D., and Kenny, J. M., "Modeling Primary Recrystallization and Grain Growth in a Low Nickel Austenitic Stainless Steel", *J. Mat. Sci*., 36, pp. 593−601, (2001).
14. Schino, A. D., Kenny, J. M., and Abbruzzese, G., "Analysis of the Recrystallization and Grain Growth Processes in AISI 316L Stainless Steel", *J. Mat. Sci*., 37, pp. 5291−98, (2002).
15. Schramm, R. E., and Reed, R.P., "Stacking Fault Energies of Seven Commercial Austenitic Stainless Steels", *Metall. Trans. A*, 6, pp. 1345−1351, (1975).
16. Robert, A. V., "Grain Boundary Diffusion and Free Energy During the Recrystallization of type 316L Stainless Steel", *Mater. Sci. and Eng*., 66, pp. 97−105, (1984).
17. Daruvala, H. S., and Bube, K. R., "Tracer Diffusion of Chromium in 321 Stainless Steel", *J. Nuclear Materials*, 87, pp. 211–213, (1979).
18. Tamura, I., Sekine, H., Tanaka, T., and Ouchi, C., "*Thermomechanical Processing of High Strength Low Alloy Steels*", Butterworths-Heinemann, London, (1988).
19. Dehghan-Manshadi, A., Barnett, M. R., and Hodgson, P. D., "Recrystallization in AISI 304 Austenitic Stainless Steel during and after Hot Deformation", *Mater. Sci. Eng. A*, 485, p. 664, (2008).
20. Wejrzanowski, T., Batorski, K., and Kurzydyowski, K .J., "Grain Growth Modelling: 3D and 2D Correlation", *Mat. Characterization*, 56, pp. 336–339, (2006).
21. Matsuura, K., and Itoh, A. Y., "Analysis of the Effect of Grain Size Distribution on Grain Growth by Computer Simulation", *ISIJ Int*., 31, pp. 366–371, (1991).

22. Thorvaldsen, A., "The Intercept Method-1. Evaluation of Grain Shape", *Acta Mater*., 45, pp. 587−594, (1997).

23. Stewart, G. R., and Jonas, J. J., "Static and Dynamic Strain Aging at High Temperatures in 304 Stainless Steel", *ISIJ Int*., 44, pp. 1263−1272, (2004).

24. Tekin, A., Martin, J. W., and Senior, B. A., "Grain Boundary Sensitization and Desensitization during the Aging of 316L(N) Austenitic Stainless Steels", *J. Mat. Sci*., 26, pp. 2458−2466, (1991).

25. Sourmail, T., Too, C. H., and Bhadeshia, H. K. D. H., "Sensitisation and Evolution of Chromium-depleted Zones in Fe–Cr–Ni–C Systems", *ISIJ Int*., 43, pp. 1814–1820, (2003).

26. Too, C. H., "*Sensitization of Austenitic Stainless Steels*", PhD Thesis, University of Cambridge, Department of Material Science and Metallurgy, Pembroke Street, Cambridge CB2 3QZ, August (2002).

27. Porter, D. A., and Easterling, K. E., "*Phase Transformations in Metals and Alloys*", 2nd ed., CRC Press, New York, (1992).

28. Dillon, S. J., Behera, S. K., and Harmer, M. P., "An Experimentally Quantifiable Solute Drag Factor", *Acta Materialia*, 56, pp. 1374–1379, (2008).